

**PRODUCTION OF ALUMINUM NITRIDE-BASED SINTERED BODY****Publication number:** JP2221162 (A)**Publication date:** 1990-09-04**Inventor(s):** HAMA MASAAKI; TANAKA SHINICHIRO; NISHIDA HIRONORI**Applicant(s):** SUMITOMO CHEMICAL CO**Classification:**

- international: C04B35/581; C04B35/58; C04B35/581; C04B35/58; (IPC1-7): C04B35/58

- European:

**Application number:** JP19890044814 19890222**Priority number(s):** JP19890044814 19890222**Abstract of JP 2221162 (A)**

PURPOSE: To increase heat conductivity by adding glass powder to AlN powder having a specified oxygen content, carrying out molding and sintering. CONSTITUTION: The oxygen content of AlN powder is regulated to 2-15wt.% by calcining at about 1,000 deg.C in the air. Borosilicate glass powder, e.g. contg., by weight, 40-70% SiO<sub>2</sub>, 5-20% B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 5-15% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 1-10% MgO and 1-5% Na<sub>2</sub>O is added to the AlN powder by 10-70wt.% of the total amt. of the powders, a binder such as polyvinyl butyral is further added and they are mixed, molded and pressed under about 1,500kg/cm<sup>2</sup>; pressure. Wiring is drawn on the resulting molded body by printing with paste of powder of a material such as Cu, Ag, Ag-Pd or Au and the molded body is sintered at a temp. below the m.p. of the used material, e.g., at <1,050 deg.C in the case of Cu in the air or in an N<sub>2</sub> atmosphere to obtain an AlN sintered body.

Data supplied from the esp@cenet database — Worldwide

## ⑫ 公開特許公報 (A) 平2-221162

⑬ Int. Cl. 5

C 04 B 35/58

識別記号 庁内整理番号  
104 A 7412-4G

⑭ 公開 平成2年(1990)9月4日

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全4頁)

⑮ 発明の名称 窒化アルミニウム質焼成体の製法

⑯ 特願 平1-44814

⑰ 出願 平1(1989)2月22日

⑱ 発明者 浜 正明 大阪府高槻市塚原2丁目10番1号 住友化学工業株式会社  
内⑲ 発明者 田中 紳一郎 大阪府高槻市塚原2丁目10番1号 住友化学工業株式会社  
内⑳ 発明者 西田 裕紀 大阪府高槻市塚原2丁目10番1号 住友化学工業株式会社  
内

㉑ 出願人 住友化学工業株式会社

㉒ 代理人 弁理士 諸石 光熙 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

外1名

## 明細書

## 1. 発明の名称

窒化アルミニウム質焼成体の製法

## 2. 特許請求の範囲

酸素含有量が2~15重量%の窒化アルミニウム粉末にガラス粉末を加え、成形後、焼成することを特徴とする窒化アルミニウム質焼成体の製造方法。

## 3. 発明の詳細な説明

## 〔産業上の利用分野〕

本発明は、銅、銀、銀-パラジウム系、金等と同時焼成可能で、しかも熱伝導率が高い窒化アルミニウムを主体とした焼成体を提供しようとするものである。

## 〔従来の技術〕

エレクトロニクス素子の高集積化がますます進展するに従って、素子が発生する単位面積あたりの熱量が増大しているが、基板の熱伝導率が低いために、素子の発生する熱で素子の温度が上昇し、

素子の機能に障害が生じることが問題になってきており、さらなる高集積化を妨げている。

そこで、素子の発生する熱の放散を効率的に行うことができる熱伝導率の高い基板材料が求められており、現在窒化アルミニウムが高熱伝導性物質として注目されている。

しかし、焼結助剤を用いても1600~2000℃の高い焼結温度が必要である。

一般に、電子回路は高温で焼結して得られた窒化アルミニウム基板上に、銅、銀、銀-パラジウム系、金等の粉末のペーストを印刷して配線を描き、配線材料の融点以下で焼成して配線を焼付けた後に素子を取り付けることによって製造される。

また、より実装密度の高い多層基板を使用したハイブリッドICを、より効率的に安価に製造するためには、低温で焼成可能なアルミナ-ガラス基板が製造されている。

たとえば、アルミナとガラスの粉末を適当なバインダー等を加えて混合し、ドクターブレード法でグリーンシートを作製し、その上に銅、銀、銀

一パラジウム系、金等の粉末のペーストを印刷して配線を形成し、それらの配線材料が溶融しない温度で焼成し、グリーンシートの焼成と配線の焼付けとを同時に行なう方法が採用されている。

これらの配線材料の中では融点は銅が最も高く1084℃であるから、少なくとも1050℃以下で焼成しなければならない。

低温で液相を生成する物質を使用せず、酸化イットリウムや酸化カルシウム等の焼結助剤を数%加えて成形した窒化アルミニウムの成形体上に、金属粉末ペーストで配線を描き、焼成して窒化アルミニウムの焼結と配線の焼付けとを同時に行なうことも可能であるが、焼結温度が1600～2000℃の範囲で焼成可能な金属は、電気抵抗が比較的高いタンクステンかモリブデンに限られる。

#### 〔発明が解決しようとする課題〕

アルミナの焼結体の基板は10～20W/mK程度の熱伝導率があるが、低温焼成が可能な同時焼成用のアルミナーガラス複合焼成体の熱伝導率はせいぜい3W/mK程度であり、素子の放熱の問題に充分対

応できるような熱伝導性を有しているとは言えない。

また、窒化アルミニウムの成形体で同時焼成を行なう場合は、窒化アルミニウムの熱伝導率が100W/mK以上のものが容易に得られるが、焼結には1600～2000℃の高温が必要なため、高温焼成用の高価な炉と多くのエネルギーとを必要とするだけでなく、配線材料としてはタンクステンまたはモリブデンしか使用できず、さらに配線材料の電気抵抗が高いことが問題になっている。

そこで、配線材料として電気抵抗が小さい銅、銀、銀一パラジウム系、金等を用いる場合にはその融点以下で焼成する必要があり、低温でも焼成可能でしかも高い熱伝導率が得られるものとして窒化アルミニウムー低融点化合物複合体について検討した。

アルミナより高い熱伝導率を有する窒化アルミニウム粉末に、ガラス粉末を加えることにより低温でも焼成可能な窒化アルミニウム組成物を得ることができるという考えは、すでに特開昭63-210-

043号公報に開示されているが、安定して緻密でしかも高い熱伝導率が得られるものではなかった。  
〔課題を解決するための手段〕

この問題点を解決するために、窒化アルミニウム粉末とその焼成体の熱伝導率との関係について研究検討を重ねた結果、窒化アルミニウム粉末の表面に存在する酸化層の量が焼成体の熱伝導率に関係があることを見出した。

数%の焼結助剤を添加して1600℃以上の高温で焼結して高い熱伝導率を得るためにには、原料である窒化アルミニウム粉末に含まれる酸素含有量は少ない方がよいとされている。

しかし、ガラス粉末と混合して1050℃以下で焼成する場合は、ある程度酸素含有量が多い方が高い熱伝導率が得られることを見出した。

従って、酸素含有量が多い窒化アルミニウム粉末を用いるか、または空気中で1000℃程度で焼成するなど、何等かの方法で窒化アルミニウム粉末を酸化し、酸素含有量を増加させて用いると、熱伝導率の高い焼成体を得ることができる。

すなわち、本発明は酸素含有量が2～15重量%の窒化アルミニウム粉末にガラス粉末を加え、成形後、焼成することを特徴とする窒化アルミニウム質焼成体の製造方法に関するものである。

本発明によれば、高い熱伝導率を持った窒化アルミニウム質焼成体を得ることができる。

以下、本発明について詳述する。

本発明において、種々の酸素含有量の窒化アルミニウム粉末を用いて実験を行なったところ、酸素含有量は少なくとも2重量%以上、好ましくは2.5重量%以上、さらに好ましくは3重量%以上である。

また、酸素含有量が多すぎる場合、粒子表面の酸化層が熱の伝導を阻害して窒化アルミニウム本来の高い熱伝導率が得られない。

したがって、酸素含有量が15重量%を超えると焼成体の熱伝導率が低下するので、酸素含有量は15重量%以下、好ましくは12重量%以下、さらに好ましくは8重量%以下である。

ガラスについてはホウケイ酸ガラスが用いられ

る。

たとえば、 $\text{SiO}_2$ が40～70重量%、 $\text{B}_2\text{O}_3$ が5～20重量%、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ が5～15重量%、 $\text{MgO}$ が1～10重量%、 $\text{Na}_2\text{O}$ が1～5重量%からなる組成のものを用いることができる。

ガラス粉末の添加量が少ない場合、焼成時に生成する液相の量も少ないので緻密化せず、多い場合は熱伝導率の向上を阻害するので、ガラス粉末の添加量は粉末全体に対して10～70体積%である。

成形体を得るには、窒化アルミニウムとガラスの粉末に適当なバインダー等を加え、ボールミル等で混合し、スラリーのままドクターブレード法でシート状に成形する方法が適用できる。

バインダーとしては、ポリビニルビチラールやポリメチルメタクリレート等を用いることができる。

また、湿式ボールミルで生成したスラリーを乾燥したり、乾式で混合するなどして得た混合粉末をプレス成形により成形することもできる。

本発明は、成形方法について特に限定するもの

ではない。

得られた成形体に銅、銀、銀-パラジウム系、金等の粉末のペーストで印刷し、それを大気中または窒素雰囲気中で配線に使用した材料の融点以下の温度、たとえば銅では1050℃以下、で焼成して窒化アルミニウム質焼成体を得る。

以下、本発明を実施例により説明するが、本発明はこれ等に限定されるものではない。

なお、諸物性の測定は次の装置および方法で行った。

#### (酸素含有量)

インパルス加熱-赤外線吸収法

装置：堀場製作所 EMGA-2800

#### (粒径分布)

X線透過式沈降法

装置：Micromeritics 社 Sedigraph 5000BT

#### (熱伝導率)

レーザーフラッシュ法

装置：真空理工 TC-7000型

#### 実施例 1

中心粒径  $1.5 \mu\text{m}$  酸素含有量 0.8重量%の窒化アルミニウム粉末を、空気中 850℃で酸化し、酸素含有量が 2.1重量%の粉末を得た。

該窒化アルミニウム粉末に対し、 $\text{SiO}_2-\text{B}_2\text{O}_3$  系ガラス粉末を50体積%になるように加え、金型で  $300\text{Kg}/\text{cm}^2$  の圧力で成形し、さらに  $1500\text{Kg}/\text{cm}^2$  のラバープレスを行なった。

得られた成形体を 950℃で30分焼成した。

焼成体の熱伝導率は  $10\text{W}/\text{mK}$  であった。

#### 実施例 2

中心粒径  $1.5 \mu\text{m}$  酸素含有量 0.8重量%の窒化アルミニウム粉末を、空気中 850℃で酸化し、酸素含有量が 5.7重量%の粉末を得た。

該窒化アルミニウム粉末に対し、 $\text{SiO}_2-\text{B}_2\text{O}_3$  系ガラス粉末を50体積%になるように加え、実施例1と同様にして焼成体を得た。

焼成体の熱伝導率は  $19\text{W}/\text{mK}$  であった。

#### 実施例 3

中心粒径  $1.3 \mu\text{m}$  酸素含有量 1.8重量%の窒化

アルミニウム粉末を、空気中 850℃で酸化し、酸素含有量が 9.6重量%の粉末を得た。

該窒化アルミニウム粉末に対し、 $\text{SiO}_2-\text{B}_2\text{O}_3$  系ガラス粉末を40体積%になるように加え、金型で  $300\text{Kg}/\text{cm}^2$  の圧力で成形し、さらに  $1500\text{Kg}/\text{cm}^2$  のラバープレスを行なった。

得られた成形体を 950℃で30分焼成した。

焼成体の熱伝導率は  $10\text{W}/\text{mK}$  であった。

#### 実施例 4

中心粒径  $1.3 \mu\text{m}$  酸素含有量 1.8重量%の窒化アルミニウム粉末を、空気中 850℃で酸化し、酸素含有量が 13.3重量%の粉末を得た。

該窒化アルミニウム粉末に対し、 $\text{SiO}_2-\text{B}_2\text{O}_3$  系ガラス粉末を40体積%になるように加え、実施例3と同様にして焼成体を得た。

焼成体の熱伝導率は  $9\text{W}/\text{mK}$  であった。

#### 実施例 5

中心粒径  $3.0 \mu\text{m}$  酸素含有量 1.4重量%の窒化アルミニウム粉末を、空気中 1000℃で酸化し、酸素含有量が 3.5重量%の粉末を得た。

該窒化アルミニウム粉末に対し、 $\text{SiO}_2\text{-B}_2\text{O}_3$  系ガラス粉末を50体積%になるように加え、トリクロレンーエタノール混合溶媒系で、分散剤としてトリオレインをバインダーとしてポリビニルブチラールを添加し、ポールミルで混合しスラリーを得た。

該スラリーを用い、ドクターブレード法によりテープ状にキャストし、乾燥後打抜いて成形体を得た。

得られた成形体を950℃で30分焼成した。

焼成体の熱伝導率は19W/mKであった。

#### 実施例 6

中心粒径3.0μm酸素含有量1.4重量%の窒化アルミニウム粉末を、空気中1000℃で酸化し、酸素含有量が7.9重量%の粉末を得た。

該窒化アルミニウム粉末に対し、 $\text{SiO}_2\text{-B}_2\text{O}_3$  系ガラス粉末を50体積%になるように加え、実施例5と同様にして焼成体を得た。

焼成体の熱伝導率は17W/mKであった。

#### 比較例 1

中心粒径1.5μm酸素含有量0.9重量%の窒化アルミニウム粉末に対し、 $\text{SiO}_2\text{-B}_2\text{O}_3$  系ガラス粉末を50体積%になるように加え、実施例1と同様にして焼成体を得た。

焼成体の熱伝導率は2W/mKであった。

#### 比較例 2

中心粒径3.0μm酸素含有量1.4重量%の窒化アルミニウム粉末に対し、 $\text{SiO}_2\text{-B}_2\text{O}_3$  系ガラス粉末を50体積%になるように加え、実施例1と同様にして焼成体を得た。

焼成体の熱伝導率は4W/mKであった。

#### 比較例 3

中心粒径1.5μm酸素含有量0.9重量%の窒化アルミニウム粉末を、空気中1000℃で酸化し、酸素含有量が25.4重量%の粉末を得た。

該窒化アルミニウム粉末に対し、 $\text{SiO}_2\text{-B}_2\text{O}_3$  系ガラス粉末を50体積%になるように加え、実施例1と同様にして焼成体を得た。

焼成体の熱伝導率は3W/mKであった。

#### [発明の効果]

本発明によれば、銅、銀、銀-パラジウム系、金等と同時焼成が可能な1050℃以下の低温で焼成することができ、しかも従来のアルミナーガラス基板よりも熱伝導率が高い窒化アルミニウムを主体とした焼成体を得ることができる。

